PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number:

2002-145936

(43)Date of publication of application: 22.05.2002

(51)Int.CI.

CO8F 20/38 C08F299/06 CO8G 18/67 // C09D175/16

(21)Application number : 2000-338596

(71)Applicant: JSR CORP

(22)Date of filing:

07.11.2000

(72)Inventor: MANO HIROYUKI

ITAI SHINGO

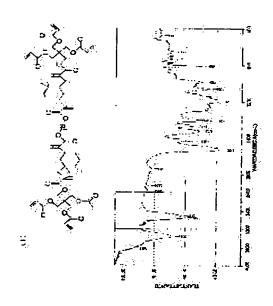
NISHIKAWA AKIRA

(54) FLUORINE-CONTAINING POLYFUNCTIONAL URETHANE ACRYLATE AND METHOD FOR PRODUCING THE SAME

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a fluorine-containing polyfunctional urethane acrylate useful for the application for an antireflection film or the like, and further to provide a method for producing the urethane acrylate.

SOLUTION: This fluorine-containing polyfunctional urethane acrylate is represented by the formula (1) [wherein, R1 is a divalent organic group represented by -CH2CH(CH2OCH2CH2CnF2n+1)]-(n is an integer of 2-10) or -CH2(CF2)mCH2- (m is an integer of 4-10)].



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

BEST AVAILABLE COPY

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号 特開2002-145936

(P2002-145936A)

(43)公開日 平成14年5月22日(2002.5.22)

(51) Int.Cl.7	識別記号	F I	テーマコード(参考)
C08F 20/38		C 0 8 F 20/38	4 J O 2 7
299/06		299/06	4J034
C 0 8 G 18/67		C 0 8 G 18/67	4 J O 3 8
// C 0 9 D 175/16		C 0 9 D 175/16	4 J 1 0 0
		なる はまま な は なな な な な な な な な な な な な な な な	r6 OI. (全8頁)

(21)出願番号 特願2000-338596(P2000-338596) (71)出願人 000004178 ジェイエスアール株式会社 (22)出願日 平成12年11月7日(2000.11.7) 東京都中央区築地2丁目11番24号 (72)発明者 真野 裕之 東京都中央区築地二丁目11番24号 ジェイ エスアール株式会社内 (72)発明者 板井 信吾 東京都中央区築地二丁目11番24号 ジェイ エスアール株式会社内 (72)発明者 西川 昭 東京都中央区築地二丁目11番24号 ジェイ エスアール株式会社内

最終頁に続く

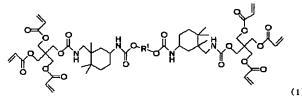
(54) 【発明の名称】 含フッ素多官能ウレタンアクリレート及びその製造方法

(57)【要約】

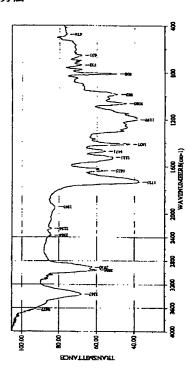
【課題】 反射防止膜用途などに有用な、含フッ素多官能ウレタンアクリレートおよびその製造方法を提供する。

【解決手段】 下記式(1)

【化1】



[式中、R¹はーCH2 CH(CH2 OCH2 CH2 CnF2n+1)ー、 (nは2~1 0の整数)、または、ーCH2 (CF2)mCH2ー、 (mは4~10の整数)で表される二価の有機基を示す。]で表される含フッ素多官能ウレタンアクリレート。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 下記式(1)

[式中、R¹は-CH₂ CH(CH₂ OCH₂ CH₂ Cn_{F2n+1})-、(nは2~1 10 0の整数)、または、-CH₂ (CF₂)_mCH₂-、(mは4~10の整数)で表される二価の有機基を示す。]で表される合フッ素多官能ウレタンアクリレート。

【請求項2】 下記式(2)

【化2】

で表される含フッ素多官能ウレタンアクリレート。

【化4】

で表される含フッ素多官能ウレタンアクリレート

【請求項5】下記式(5)の化合物

【化5】HO-R1-OH (5)

【請求項4】 下記式(4)

[式中、 R^1 はー CH_2 CH_2 CH_2 CH_2 CH_2 Cn_{F2n+1})ー、(nは2~10の整数)、または、 $-CH_2$ $(CF_2)_m$ CH_2 ー、(mは4~10の整数)で表される二価の有機基を示す。] とイソホロンジイソシアネートとを反応させ、その反応物とペンタエリスリトールトリアクリレートをさらに反応させて得られる請求項1または3に記載の含フッ素多官能ウレタンアクリレートの製造方法。

【請求項6】下記式(6)の化合物

[$\{E_6\}$] H0 – $(CH_2)_p$ – R^2 (6)

[式中、R²は炭素数1~10のフロロアルキル基を示

【化1】

(1) [式中、R²は炭素数 1 ~ 1 0 のフロロアルキル基を示し、pは 1 ~ 6 の整数を示す]で表される含フッ素多官能ウレタンアクリレート。

【請求項3】 下記式(3)

[化3]

し、pは1~6の整数を示す]とイソホロンジイソシア 30 ネートとを反応させ、その反応物とペンタエリスリトールトリアクリレートをさらに反応させて得られる請求項 2または4に記載の含フッ素多官能ウレタンアクリレートの製造方法。

【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】本発明は、含フッ素多官能ウレタンアクリレート及びその製造方法に関する。

[0002]

【従来の技術】従来、反射防止膜材料として、特開平2 000-17028号公報に開示されているように、含フッ素重合体と、多官能アクリレートと、放射線重合開始剤とからなる放射線硬化性樹脂組成物が知られている。しかしながら、このような組成物では、多官能アクリレートと含フッ素重合体との相溶性が不十分なことがあり、また得られる反射防止膜の屈折率も高くなり、十分な反射防止性能が得られにくいという問題があった。【0003】また、低屈折率の反射膜を得るために、組成物中のフッ素含量を上げ、多官能アクリレートモノマーの部数を相対的に減らす方法もあるが、この場合得られる反射防止膜の架橋密度が下がり、耐擦傷性が悪くな

ることがある。

[0004]

【発明が解決しようとする課題】このようなことから、 含フッ素重合体との相溶性が良く、多官能であり、且つ 低屈折率のアクリレートモノマーが求められていた。本 発明の目的は、反射防止膜用途などに有用な、新規な含 フッ素多官能ウレタンアクリレートおよびその製造法を 提供することにある。

[0005]

【課題を解決するための手段】本発明の上記目的は、下記式(1)、(2)、(3)及び(4)で示される含フッ素多官能ウレタンアクリレートにより達成される。

【0006】すなわち、本発明は下記式(1)で表される含フッ素多官能ウレタンアクリレート(以下「化合物(1)」と言う)により達成される。

[0007]

【化7】

(1)

【0008】[式中、R¹はーCH2 CH(CH2 OCH2 CH2 CnF2n+1) ー、(nは2~10の整数)、または、ーCH2 (CF2)mCH2ー、 (mは4~10の整数)で表される二価の有機基を示す。] 【0009】また、本発明は、下記式(2)で表される 20 含フッ素多官能ウレタンアクリレート(以下「化合物 (2)」と言う)により達成される。

[0010]

【化8】

【0011】[式中、R²は炭素数1~10のフロロアルキル基を示し、pは1~6の整数を示す] 【0012】また、本発明は、下記式(3)で表される

【00 | 2】また、本発明は、下記式(3)で表される 含フッ素多官能ウレタンアクリレート(以下「化合物 (3)」と言う)により達成される。

[0013]

【化9】

(2)

C_eF₁₃H O H C_eF₁₃H O C_e

【0014】また、本発明は、下記式(4)で表される 含フッ素多官能ウレタンアクリレート(以下「化合物 (4)」と言う)により達成される。

[0015]

【化10】

- - 【発明の実施の形態】<化合物(1)>上記一般式

(1)で表される多官能含フッ素ウレタンアクリレートは、6つのアクリル基と、2つのイソホロン骨格と、4
 つのウレタン結合およびフッ素を有する2価の有機基R¹からなる化合物である。ここでR¹は、-CH2 CH(CH2 OCH2 C H2 Cn F2n+1)-、(n=2~10の整数)、又は、-CH2 (CF2)m CH2-、(m=4~10の整数)で表される二価の有機基を示す。

(3)

【0017】本発明の化合物(1)は、下記式(5)で表されるフロロアルキル基又はフロロアルキレン基を含有するジオール(以下、「フロロアルキル基等含有ジオール」という)、イソホロンジイソシアネート、及びペンタエリスリトールトリアクリレートとを反応させることにより製造される。すなわち、イソホロンジイソシア

ネートのイソシアネート基を、フロロアルキル基等含有 ジオールの水酸基、及びペンタエリスリトールトリアク リレートの水酸基と、反応させることにより製造され る。

[0018]

【化11】HO-R1-OH (5)

[式中、R¹はーCH2 CH(CH2 OCH2 CH2 CnF2n+1)ー、(nは2~1 0の整数)、または、ーCH2 (CF2)mCH2 ー、(mは4~10の 整数)で表される二価の有機基を示す。]

【0019】この反応としては、例えばフロロアルキル 10 基等含有ジオール、イソホロンジイソシアネート、及びペンタエリスリトールトリアクリレートを一括に仕込んで反応させる方法;フロロアルキル基等含有ジオール、及びイソホロンジイソシアネートを反応させ、次いでペンタエリスリトールトリアクリレートを反応させる方法;イソホロンジイソシアネート及びペンタエリスリトールトリアクリレートを反応させ、次いでフロロアルキル基等含有ジオールを反応させる方法等が挙げられる。

【0020】しかし、フロロアルキル基等含有ジオールが未反応物として系中に存在すると、塗膜の耐擦傷性を 20低下させることになるため、フロロアルキル基等含有ジオールは十分に反応させる必要がある。従って、先ずフロロアルキル基等含有ジオールとイソホロンジイソシアネートを反応させ、次いでペンタエリスリトールトリアクリレートを反応させる方法が好ましい。

【0021】ここで用いられるフロロアルキル基等含有ジオールの例としては、フロロアルキル基が側鎖に結合した3-(2-パーフロロヘキシル)エトキシ-1,2-ジヒドロキシプロパン、フロロアルキレン基を有する2,2,3,3,4,4,5,5-オクタフロロヘキサン-1,306-ジオール、2,2,3,3,4,4,5,5,6,6,7,7-ドデカフロロ-1,8-オクタンジオールを挙げることができる。

【0022】フロロアルキル基等含有ジオールの商品名しては、トーケムプロダクツ社製MF100、ダイキンファインケミカル研究所社製A-7412、A-7612を挙げることができる。

【0023】本発明の含フッ素多官能ウレタンアクリレートは、架橋点間分子量が小さい方が好ましい。従って、ここで用いられるフロロアルキル基含有ジオールは、フロロアルキル基が側鎖に結合した3-(2-パーフロロヘキシル)エトキシー1,2-ジヒドロキシプロパンがより好ましい。

【0024】化合物(1)では、水酸基含有アクリレートとしてはペンタエリスリトールトリアクリレートを使用する。水酸基含有アクリレートとして、ペンタエリスリトールトリアクリレートのかわりに単官能のヒドロキシエチルアクリレートを使用すると、得られる含フッ素ウレタンアクリレートはアクリル基数が2であり、架橋密度が不足するため、良好な塗膜強度が得られ難い。ま 50

た、水酸基含有アクリレートとして、5官能のジベンタ エリスリトールヒドロキシベンタアクリレートを使用す ると、得られる含フッ素ウレタンアクリレートはアクリ ル基数が10であり、良好な塗膜強度は得られるもの の、フッ素含量が低いため低屈折率の塗膜が得られにく い。

【0025】フロロアルキル基等含有ジオール、イソホロンジイソシアネート及びペンタエリスリトールトリアクリレートの使用割合は、ジオール1モルに対しイソホロンジイソシアネート1.5~3モル、ペンタエリスリトールトリアクリレート1.5~3モルとなるような割合が好ましく、更に、ジオール1モルに対し、イソホロンジイソシアネート1.8~2.5モル、ペンタエリスリトールトリアクリレート1.8~2.5モルとなるような割合が特に好ましい。

【0026】化合物(1)のウレタン化反応は2段階の 反応で行うことが好ましい。すなわち、1段階目の反応 は、イソホロンジイソシアネートとフロロアルキル基等 含有ジオールの反応であり、2段階目の反応は、続くペ ンタエリスリトールトリアクリレートとの反応である。 1段階目及び2段階目の反応においては共に、通常ナフ テン酸銅、ナフテン酸コバルト、ナフテン酸亜鉛、ジブ チル錫ジラウレート、トリエチルアミン、1,4-ジア ザビシクロ〔2. 2. 2〕オクタン、2, 6, 7-トリ メチルー1, 4ージアザビシクロ〔2.2.2〕オクタ ン等のウレタン化触媒を、反応物の総量100重量部に 対して0.01~1重量部用いるのが好ましい。また、 これらの化合物の反応においては、無触媒で行うことも できる。反応温度は、1段階目は通常0~60℃であり 20~50℃で行うのが好ましい。2段階目の反応は通 常40~90℃であり50~80℃で行うのが好まし い。また、1段階目の反応において原料であるフロロア ルキル基等含有ジオールが十分反応したことを確認した 後、2段階目の反応を行うのが好ましい。

【0027】<化合物(2)>上記一般式(2)で表される多官能合フッ素ウレタンアクリレートは、3つのアクリル基と、1つのイソホロン骨格と、2つのウレタン結合およびフッ素を有する1価の有機基-(CH2)p-R2からなる化合物である。ここで、R2は炭素数1~10のフロロアルキル基を示し、pは1~6の整数を示す。

【0028】本発明の化合物(2)は、下記式(6)で表されるフロロアルキル基を含有するモノオール(以下、「フロロアルキル基含有モノオール」という)、イソホロンジイソシアネート、及びペンタエリスリトールトリアクリレートとを反応させることにより製造される。すなわち、イソホロンジイソシアネートのイソシアネート基を、フロロアルキル基含有モノオールの水酸基、及びペンタエリスリトールトリアクリレートの水酸基と、反応させることにより製造される。

[0029]

【化12】H0-(CH2)p-R2 (6) [式中、R²は炭素数1~10のフロロアルキル基を示 し、pは1~6の整数を示す]

【0030】この反応としては、例えばフロロアルキル 基含有モノオール、イソホロンジイソシアネート、及び ペンタエリスリトールトリアクリレートを一括に仕込ん で反応させる方法;フロロアルキル基含有モノオール、 及びイソホロンジイソシアネートを反応させ、次いでペ ンタエリスリトールトリアクリレートを反応させる方 法;イソホロンジイソシアネート及びペンタエリスリト 10 ールトリアクリレートを反応させ、次いでフロロアルキ ル基含有モノオールを反応させる方法等が挙げられる。 【0031】しかし、フロロアルキル基含有モノオール が未反応物として系中に存在すると、塗膜の耐擦傷性を 低下させることになるため、フロロアルキル基含有モノ オールは十分に反応させる必要がある。従って、先ずフ ロロアルキル基含有モノオールとイソホロンジイソシア ネートを反応させ、次いでペンタエリスリトールトリア クリレートを反応させる方法が好ましい。

【0032】ここで用いられるフロロアルキル基含有モ 20 ノオールの例としては、1H,1H-トリフロロエタノ ール、1H,1H-ペンタフロロプロパノール、6-(パ ーフロロエチル) ヘキサノール、1H,1H-ヘプタフ ロロブタノール、2-(パーフロロブチル) エタノー ル、3-(パーフロロブチル)プロパノール、6-(パー フロロブチル) ヘキサノール、2-パーフロロプロポキ シー2,3,3,3-テトラフロロプロパノール、2-(パ ーフロロヘキシル) エタノール、2-(パーフロロヘキ シル)プロパノール、6-(パーフロロヘキシル)へキ サノール、2-(パーフロロオクチル) エタノール、3 -(パーフロロオクチル)プロパノール、6-(パーフロ ロオクチル) ヘキサノール、2-(パーフロロデシル) エタノール、1H,1H-2,5-ジ(トリフロロメチ (μ) -3, 6 -ジオキサウンデカフロロノナノール、6-(パーフロロー1-メチルエチル) ヘキサノール、2 -(パーフロロ-3-メチルブチル)エタノール、2-(パーフロロ-5-メチルヘキシル) エタノール、2-(パーフロロー7-メチルオクチル) エタノール、1H, 1 H, 3H-テトラフロロプロパノール、1H, 1H, 5H-オクタフロロペンタノール、1H,1H,7H-ドデカフロロ 40 ヘプタノール、1H,1H,9H-ヘキサデカフロロノナノ ール、2H-ヘキサフロロ2-プロパノール、1H, 1H, 3H-ヘキサフロロブタノール、2,2-ビス(トリフロ ロメチル)プロパノール、2-(パーフロロオクチル) エタノール、(パーフロローnーブチル)メタノール、 (パーフロローn-ヘキシル) メタノール、(パーフロ ローn-オクチル)メタノール、(パーフロローn-デシ ル) メタノール、3- (パーフロロ-n-ブチル) -2 ープロペノール、3 - (パーフロロ-n-ヘキシル) -2-プロペノール、3-(パーフロロ-n-オクチル)

-2-プロベノール、3-(パーフロロ-n-デシル) -2-プロベノール、11-(パーフロロ-n-ヘキシル) ウンデカノール、11-(パーフロロ-n-ヘキシル) -10-ウンデセノール、及び11-(パーフロロ-n-オクチル) -10-ウンデセノール、等が挙げられる。

【0033】フロロアルキル基含有モノオールの商品名 しては、ダイキンファインケミカル研究所社製A-16 20、A-1630、A-1820、A-1830、等 を挙げることができる。

【0034】化合物(2)では、水酸基含有アクリレートとしては3官能のペンタエリスリトールトリアクリレートを使用するが、5官能のジペンタエリスリトールヒドロキシペンタアクリレートを使用した含フッ素ウレタンアクリレートを併用しても良い。しかし水酸基含有アクリレートとして、ペンタエリスリトールトリアクリレートのかわりに単官能のヒドロキシエチルアクリレートを使用すると、得られる含フッ素ウレタンアクリレートはアクリル基数が1であり、架橋体が得られないため、良好な塗膜強度が得られ難い。

【0035】フロロアルキル基含有モノオール、イソホロンジイソシアネート及びペンタエリスリトールトリアクリレートの使用割合は、モノオール1モルに対しイソホロンジイソシアネート0.7~1.5モル、ペンタエリスリトールトリアクリレート0.7~1.5モルとなるような割合が好ましく、更に、モノオール1モルに対し、イソホロンジイソシアネート0.9~1.2モル、ペンタエリスリトールトリアクリレート0.9~1.2モルとなるような割合が特に好ましい。

【0036】化合物(2)のウレタン化反応は2段階の 反応で行うことが好ましい。 すなわち、1段階目の反応 は、ジイソシアネートとフロロアルキル基等含有モノオ ールの反応であり、2段階目の反応は、続くペンタエリ スリトールトリアクリレートとの反応である。1段階目 及び2段階目の反応においては共に、通常ナフテン酸 銅、ナフテン酸コバルト、ナフテン酸亜鉛、ジブチル錫 ジラウレート、トリエチルアミン、1,4-ジアザビシ クロ〔2.2.2〕オクタン、2,6,7-トリメチル - 1, 4-ジアザビシクロ〔2.2.2〕オクタン等の ウレタン化触媒を、反応物の総量100重量部に対して 0.01~1 重量部用いるのが好ましい。また、これら の化合物の反応においては、無触媒で行うこともでき る。反応温度は、1段階目は通常0~60℃であり20 ~50℃で行うのが好ましい。2段階目の反応は通常4 0~90℃であり50~80℃で行うのが好ましい。ま た、1段階目の反応において原料であるフロロアルキル 基等含有モノオールが十分反応したことを確認した後、 2段階目の反応を行うのが好ましい。

【0037】本発明では、ジイソシアネートとしてはイ 50 ソホロンジイソシアネートを使用する。イソホロンジイ 20

ソシアネートはシクロヘキサン環を有しているため、環構造を有しないジイソシアネートよりもガラス転移温度が高く、塗膜の耐擦傷性は向上する。また、ジイソシアネートとして2、4ートリレンジイソシアネートのようにベンゼン環を有するジイソシアネートはシクロヘキサン環を有するジイソシアネートよりもガラス転移温度は高いが、屈折率も高いため、反射防止膜とした時に反射率が高くなり、不利である。

【0038】市販のペンタエリスリトールトリアクリレ 10 ートは、通常トリアクリレート体の他にジアクリレート 体、テトラアクリレート体、及びその他が混合されている。使用に関しては精製して用いても良いが、混合物のまま使用しても良い。

【0039】本発明の化合物の製造にあたっては溶剤を用いることが好ましい。溶剤としては通常、メチルイソブチルケトン、メチルエチルケトン等を用いることができる。また、反応時の溶質濃度は3~80%、特に20~60%で行うのが好ましい。

[0040]

【実施例】以下に本発明を実施例により具体的に説明するが、本発明はこれら実施例に限定されるものではない。

【0041】実施例1

マグネチックスターラー、窒素ガス導入管のついた還流 冷却器および温度計を備えた300ml丸底フラスコにイ ソホロンジイソシアネート10.0g(45mmol、 3-(2-パーフロロヘキシル)エトキシー1,2-ジヒ ドロキシプロパン(トーケムプロダクツ社製、MF10 0) 9. 87g(22.5mmol)、メチルイソプチ 30 ルケトン39gを順に添加し室温下で攪拌した。さら に、ジブチル錫ジラウレート0.07gを添加し、50 ℃で2時間攪拌した。その後、ペンタエリスリトールト リアクリレート(新中村化学工業社製、NKエステルA ケトン58gの混合溶液とジブチル錫ジラウレート0. 06gを添加し66℃で4時間攪拌した。この反応液の イソシアネート含量を測定すると0.08wt%であ り、反応は十分進行したことを確認した。この反応液か らエバポレーターで溶剤を留去することによって得られ 40 た不揮発成分をU-1とする。

【0042】実施例2

マグネチックスターラー、窒素ガス導入管のついた還流 冷却器および温度計を備えた300ml丸底フラスコに イソホロンジイソシアネート5.0g(22.5mmo 1)、2-パーフロロオクチルエタノール(ダイキンファインケミカル研究所社製、A1820)10.5g (22.5mmol)、メチルイソブチルケトン40g を順に添加し室温下で攪拌した。ジブチル錫ジラウレート0.07gを添加し、50℃で2時間攪拌した。その後、ペンタエリスリトールトリアクリレート(新中村化学工業社製、NKエステルA-TMM-3LM-N)10.5gとメチルイソブチルケトン30gの混合溶液で5時間攪拌した。この反応液のイソシアネート含量を測定すると0.01wt%であり、反応は十分進行したことを確認した。この反応液からエパポレーターで溶剤を留去することによって得られた不揮発成分をU-2とする.

【0043】<IR分析およびTOFMass分析>本 発明の化合物である樹脂液中の不揮発成分U-1、U-2を日本電子社製フーリエ変換赤外分光光度計JIR-5500を用いてIR分析を行った。その結果を図1及 び図2に示す。また、アプライドバイオシステムズ社製 Voyager™ Eliteを用いてTOFMas s(Time Of FlightMass Spec troscopy)測定を行った。その結果を図3及び 図4に示す。

【0044】図1及び図2より、以下の波数領域にそれぞれの結合に基づく吸収が確認された。

3 3 7 0 cm⁻¹ - N - H -

1 7 3 0 cm⁻¹ -C = O

1 5 2 0 cm⁻¹ - N - H -

1 2 0 0 cm⁻¹ - C - O -

この結果から、U-1、U-2にはウレタン結合が存在 することが示唆された。

【0045】図3より、1501. 95m/zにピークがある。これは化合物(3)とナトリウムイオンの分子量に相当する。この結果より、U-1には化合物(3)が含まれることが示唆された。

【0046】図4より、1007. 84m/zにピークがある。これは化合物(4)とナトリウムイオンの分子量に相当する。この結果より、U-2には化合物(4)が含まれることが示唆された。

40 【0047】上記の結果から、U-1及びU-2に含有される化合物は、それぞれ下記式(3)及び(4)が主体であると判断された。

[0048]

【化13】

(3)

[0049] 【化14】

(4)

【0050】 【発明の効果】本発明の化合物は、含フッ素重合体と良 好な相溶性を示し、従来よりも低屈折率であり、且つ耐 擦傷性に優れた塗膜を与えることができる。

【図面の簡単な説明】

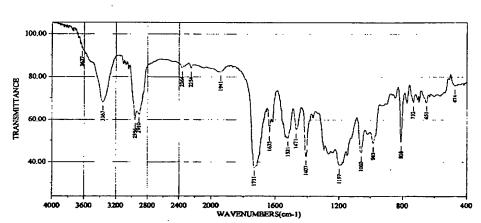
【図1】図1は実施例1で得られた化合物U-1のIR チャートを示す。

【図2】図2は実施例2で得られた化合物U-20IRチャートを示す。

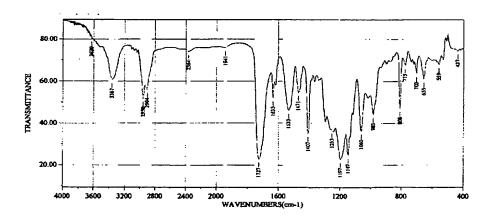
【図3】図3は実施例1で得られた化合物U-1のTOFM assチャートを示す。

【図4】図4は実施例2で得られた化合物U-2のTOFM assチャートを示す。

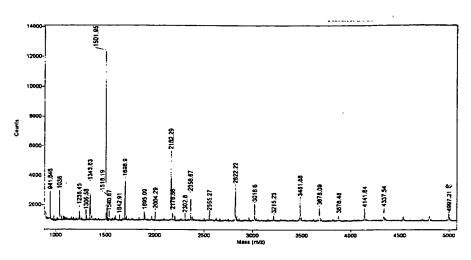
【図1】



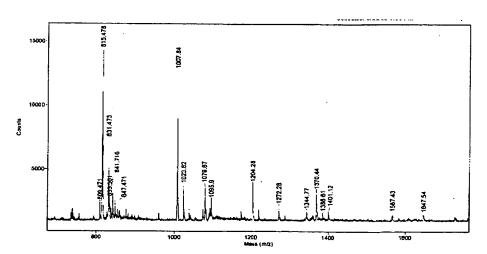
【図2】



[図3]



【図4】



フロントページの続き

F 夕一ム(参考) 4J027 AG04 AG09 AG27 AG34 CD08
4J034 BA02 CA01 CA02 CC01 CC02
CC03 CD12 DP18 FA02 FB01
FC01 FC02 FC03 FD01 HA01
HA06 HA07 HC22 HC46 HC52
HC61 HC71 HC73 KA01 KC04
KC08 KC17 KC35 KD02 KD11
KD12 QB08 QB14 QC05 RA07
4J038 FA281 GA12 LA02 NA19
4J100 AL67P BA02P BA38P BA39P
BB18P BC04P CA01 DA48

DA63 JA01

50

40